

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

REC'D 20 JUL 2004

WIPO

PCT

13 SEP 2004



Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts D80612PC	WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/PEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03/02753	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 17.03.2003	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 15.03.2002
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C07C51/43		
Anmelder STOCKHAUSEN GMBH & CO. KG et al		

- Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
- Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 5 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.

☒ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

 Diese Anlagen umfassen insgesamt 7 Blätter.

- Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:
 - ☒ Grundlage des Bescheids
 - ☐ Priorität
 - ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
 - ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
 - ☒ Begründete Feststellung nach Regel 66.2 a)ii) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
 - ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
 - ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
 - ☐ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags 15.10.2003	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 19.07.2004
Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter Goetz, G Tel. +49 89 2399-8105 

I. Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):

Beschreibung, Seiten

1-74 in der ursprünglich eingereichten Fassung

Ansprüche, Nr.

1-21 eingegangen am 08.03.2004 mit Schreiben vom 04.03.2004

Zeichnungen, Blätter

1-7 in der ursprünglich eingereichten Fassung

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um:

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung, Seiten:
- ☐ Ansprüche, Nr.:
- ☐ Zeichnungen, Blatt:

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen.)

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

- | | |
|--------------------------------|-----------------------|
| 1. Feststellung | |
| Neuheit (N) | Ja: Ansprüche 1-16 |
| | Nein: Ansprüche 17-21 |
| Erfinderische Tätigkeit (IS) | Ja: Ansprüche 1-16 |
| | Nein: Ansprüche |
| Gewerbliche Anwendbarkeit (IA) | Ja: Ansprüche: 1-16 |
| | Nein: Ansprüche: |

2. Unterlagen und Erklärungen:

siehe Beiblatt

- D1: US-A-4 780 568 (PASCOE RALPH F) 25. Oktober 1988 (1988-10-25)
D2: EP-A-0 616 998 (SULZER CHEMTECH AG) 28. September 1994 (1994-09-28) in der Anmeldung erwähnt
D3: DE 197 40 252 A (BASF AG) 18. März 1999 (1999-03-18) in der Anmeldung erwähnt

1. Das beanspruchte Verfahren gemäß der Ansprüche 1 bis 8 und 16 unterscheidet sich von den aus D1 bis D3 bekannten Verfahren dadurch, dass erfindungsgemäß die aufzureinigende (Meth)Acrylsäure-Zusammensetzung einen bestimmtem Wassergehalt aufweist, während die Zusammensetzungen von D1 bis D3 wasserfrei sind.

Die Vorrichtung gemäß der Ansprüche 9 bis 15 unterscheidet sich von den in D1 bis D3 offenbarten Vorrichtungen durch die Anwesenheit eines (Meth)Acrylsäure-Reaktors in Kombination mit einem Quenchabsorber.

Der Gegenstand der Ansprüche 1 bis 16 ist damit neu gegenüber besagtem Stand der Technik (PCT Artikel 33.2).

2. Ausgehend von D1 kann die zugrunde liegende Aufgabe darin gesehen werden, eine wässrige (Meth)Acrylsäure-Zusammensetzung direkt mittels eines Kristallisationsverfahrens aufzureinigen.

Erfindungsgemäß wird diese Aufgabe gelöst durch das Verfahren gemäß Anspruch 1 und der Vorrichtung gemäß Anspruch 9.

Aus dem Stand der Technik ist kein Hinweis zu finden, der den Fachmann auf das beanspruchte Verfahren und die beanspruchte Vorrichtung hinleiten würde, da in den in D1 bis D3 offenbarten Kristallisationsverfahren immer eine wasserfreie (Meth)Acrylsäure-Zusammensetzung als Ausgangszubereitung genommen wird und eine Übertragung auf wasserhaltige (Meth)Acrylsäure-Zusammensetzungen nicht naheliegend erscheint.

Ebenso ist die beanspruchte Vorrichtung als nicht aus dem Stand der Technik naheliegend zu betrachten, da mit dieser Vorrichtung wasserhaltige (Meth)Acrylsäure-Zubereitungen aufgereinigt werden können.

Zudem ist der erreichte Reinigungsgrad (über 99,5%) ausgehend von wasserhaltiger (Meth)Acrylsäure-Zusammensetzung als deutlicher Effekt zu werten.

Damit basiert der Gegenstand der Ansprüche 1 bis 16 auf einer erfinderischen Tätigkeit (PCT Artikel 33.3)

3. Der Gegenstand der Ansprüche 1 bis 16 ist gewerblich anwendbar (PCT Artikel

33.4)

4. Ein Stoffanspruch (Ansprüche 17,19,20) sowie ein Verfahren zur Herstellung einer Verbindung (Anspruch 18) oder deren Verwendung (Anspruch 21) werden nicht dadurch neu, dass die Verbindung durch ein gegenüber dem Stand der Technik evtl. geändertes Verfahren hergestellt worden ist.
Die Neuheit eines Stoffes ist nicht von einem bestimmten Reinheitsgrad abhängig, zumal (Meth)Acrylsäure in reiner Form erhältlich ist.
Der Gegenstand der Ansprüche 17 bis 21 ist somit gegenüber dem Stand der Technik (wie auch in der Beschreibung genannt) als nicht neu anzusehen (PCT Artikel 33.2).
5. Durch die Ausführungen auf den Seiten 14 und 15 erscheint es wesentlich, dass die (Meth)Acrylsäure-Kristalle die Bedingungen des Anspruchs 2 erfüllen.
Diese kennzeichnenden Merkmale fehlen in Hauptanspruch 1.
6. Anspruch 10 erscheint überflüssig (PCT Artikel 6).
7. Der Stand der Technik wie in D1 offenbart sollte in der Beschreibung erwähnt werden.
8. Die Beschreibung ist nicht an die Ansprüche angepasst.

Anlage

Patentansprüche

1. Verfahren zur Aufreinigung von einer Zusammensetzung, bein-
haltend (Meth)Acrylsäure, mindestens eine Verunreinigung
und Wasser, wobei die Zusammensetzung einen Wassergehalt
im Bereich von 0,55 bis 90, bezogen auf die Zusammenset-
zung, aufweist zu einer gereinigten Phase, beinhaltend
(Meth)Acrylsäure und mindestens eine Verunreinigung, wobei
in der gereinigten Phase die Menge an mindestens einer
Verunreinigung weniger als 7 Gew.-%, bezogen auf die
(Meth)Acrylsäure in der gereinigten Phase, beinhaltet,
aufweisend eine Verfahrensstufe, welche folgende Verfah-
rensschritte umfasst:
 - a) (Meth)Acrylsäure wird aus der Zusammensetzung unter
Bildung einer Suspension, beinhaltend eine Mutterlauge
und (Meth)Acrylsäurekristalle, auskristallisiert;
 - b) (Meth)Acrylsäurekristalle werden von der Mutterlauge
abgetrennt;
 - c) mindestens ein Teil der abgetrennten
(Meth)Acrylsäurekristalle wird zu einer Schmelze auf-
geschmolzen; und
 - d) ein Teil der Schmelze wird dem Schritt a) oder dem
Schritt b) zurückgeführt und wobei der nicht zurückge-
führte Teil der Schmelze als eine abgetrennte
(Meth)Acrylsäure vorliegt.

2. Verfahren nach Anspruch 1, wobei in dem Schritt a) (Meth)Acrylsäure zumindest teilweise zu einem Kristall mit einer Kristallstruktur mit einer Oberfläche mit mindestens einer an der Oberfläche befindlichen Ausnehmung auskristallisiert, wobei die Kristallstruktur ein orthorombisches Bravais-Kristallgitter mit Raumgruppe Ibam, kristallographische Daten $a=9,952$ Å, $b=11,767$ Å und $c=6,206$ Å aufweist.
3. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 oder 2 wobei in dem Schritt a) die Mutterlauge zumindest 60 Gew.-% (Meth)Acrylsäure und Wasser aufweist, wobei die Wasserkonzentration der Mutterlauge im Bereich von 10 und 90 Gew.-% liegt.
4. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die (Meth)Acrylsäurekristalle im Gegenstrom von der zurückgeführten Schmelze gewaschen werden.
5. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die Schmelze in einem separaten Reinigungsverfahren gereinigt wird.
6. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die (Meth)Acrylsäurekristalle aus Schritt b) zumindest teilweise in den Schritt a) zugeführt werden.

7. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei

die nach dem Schritt b) abgetrennte Mutterlauge zumindest teilweise in den Schritt a) zurückgeführt wird.

8. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei das Verfahren mindestens zwei Verfahrensstufen aufweist, die jeweils die Schritte a) bis d) aufweisen, wobei mindestens eines der folgenden Merkmale ($\alpha 1$) bis ($\alpha 4$) erfüllt ist:

($\alpha 1$) abgetrennte (Meth)Acrylsäure aus einer ersten Verfahrensstufe wird zumindest teilweise einer zweiten Verfahrensstufe zugeführt;

($\alpha 2$) abgetrennte (Meth)Acrylsäure aus einer zweiten Verfahrensstufe wird zumindest teilweise einer ersten Verfahrensstufe zugeführt;

($\alpha 3$) Mutterlauge einer ersten Verfahrensstufe wird zumindest teilweise einer zweiten Verfahrensstufe zugeführt;

($\alpha 4$) Mutterlauge einer zweiten Verfahrensstufe wird zumindest teilweise einer ersten Verfahrensstufe zugeführt.

9. Vorrichtung zur Herstellung von (Meth)Acrylsäure umfassend als fluidleitend miteinander verbundene Komponenten eine (Meth)Acrylsäure-Syntheseeinheit beinhaltend einen (Meth)Acrylsäure-Reaktor sowie einen Quenchabsorber, und eine Aufreinigungsvorrichtung, die eine Vorrichtungseinheit aufweist, welche die Merkmale ($\delta 1$) bis ($\delta 4$) umfasst:

(81) die Vorrichtungseinheit weist einen Kristallisationsbereich, einen Trennbereich, einen Aufschmelzer, und mindestens drei Führungen auf;

(82) der Kristallisationsbereich ist mit dem Trennbereich über eine erste Führung verbunden;

(83) der Trennbereich ist mit dem Aufschmelzer über eine zweite Führung verbunden;

(84) der Aufschmelzer ist mit dem Kristallisationsbereich über eine dritte Führung oder mit dem Trennbereich über eine vierte Führung verbunden;

wobei die Aufreinigungsvorrichtung einen Zulauf aufweist, der eine Zusammensetzung, beinhaltend (Meth)Acrylsäure, mindestens eine Verunreinigung und Wasser, wobei die Zusammensetzung einen Wassergehalt im Bereich von 0,55 bis 90, vorzugsweise von 7 bis 50 und besonders bevorzugt von 10 bis 25 Gew.-%, bezogen auf die Zusammensetzung, aufweist, führt.

10. Vorrichtung nach Anspruch 9, wobei die (Meth)Acrylsäuresyntheseeinheit und die Aufreinigungsvorrichtung ohne eine Destillationsvorrichtung miteinander verbunden sind.

11. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 9 oder 10, wobei die Vorrichtungseinheit eine separate Reinigungsvorrichtung aufweist.

12. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 9 bis 11, wobei der Trennbereich mit dem Kristallisationsbereich durch eine erste Rückführung für abgetrennte (Meth)Acrylsäure verbunden ist.
13. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 9 bis 12, wobei der Trennbereich mit dem Kristallisationsbereich durch eine zweite Rückführung für abgetrennte Mutterlauge verbunden ist.
14. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 9 bis 13, gekennzeichnet durch mindestens zwei Vorrichtungseinheiten gemäß den Merkmalen (δ1) bis (δ4), die durch mindestens eine Verbindungsleitung verbunden sind, wobei die Verbindungsleitung eine Zuleitung oder eine Rückleitung ist, und wobei mindestens eines der folgenden Merkmale (ε1) bis (ε4) erfüllt ist:
- (ε1) der Trennbereich einer ersten Vorrichtungseinheit ist über die Verbindungsleitung mit dem Kristallisationsbereich einer zweiten Vorrichtungseinheit verbunden;
 - (ε2) der Aufschmelzer einer ersten Vorrichtungseinheit ist über die Verbindungsleitung mit dem Kristallisationsbereich einer zweiten Vorrichtungseinheit verbunden;
 - (ε3) der Trennbereich einer zweiten Vorrichtungseinheit ist über die Verbindungsleitung mit dem Kristallisa-

tionsbereich einer ersten Vorrichtungseinheit verbunden;

(e4) der Aufschmelzer einer zweiten Vorrichtungseinheit ist über die Verbindungsleitung mit dem Kristallisationsbereich einer ersten Vorrichtungseinheit verbunden.

15. Vorrichtung zur Polymerisation von (Meth)Acrylsäure, beinhaltend eine Vorrichtung zur Herstellung von (Meth)Acrylsäure nach einem der Ansprüche 9 bis 14 und eine Polymerisationseinheit, wobei die Aufreinigungsvorrichtung der Vorrichtung zur Herstellung von (Meth)Acrylsäure mit der Polymerisationseinheit verbunden ist.

16. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 8, wobei das Verfahren in einer Vorrichtung nach einem der Ansprüche 10 bis 14 erfolgt.

17. (Meth)Acrylsäure, erhältlich nach einem Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 8 oder 16.

18. Verfahren zur Herstellung eines auf (Meth)Acrylsäure basierenden Polymers, wobei eine (Meth)Acrylsäure nach Anspruch 17 polymerisiert wird.

19. Polymer, erhältlich nach einem Verfahren nach Anspruch 18.

20. Fasern, Formkörper, Filme, Schäume, superabsorbierende Polymere, Spezialpolymere für die Bereiche Abwasserbehandlung, Dispersionsfarben, Kosmetika, Textilien, Lederveredelung oder Papierherstellung oder Hygieneartikel, mindestens basierend auf oder beinhaltend (Meth)Acrylsäure nach Anspruch 17 oder einem Polymer nach Anspruch 19.
21. Verwendung der (Meth)Acrylsäure nach Anspruch 17 oder einem Polymer nach Anspruch 19 in oder zur Herstellung von Fasern, Formkörpern, Filmen, Schäumen, superabsorbierenden Polymeren oder Hygieneartikeln, Detergentien oder Spezialpolymere für die Bereiche Abwasserbehandlung, Dispersionsfarben, Kosmetika, Textilien, Lederveredelung oder Papierherstellung.